

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-132080

(43)Date of publication of application : 13.05.1994

(51)Int.Cl.

H05B 33/14
C09K 11/06

(21)Application number : 04-279669

(71)Applicant : IDEMITSU KOSAN CO LTD

(22)Date of filing : 19.10.1992

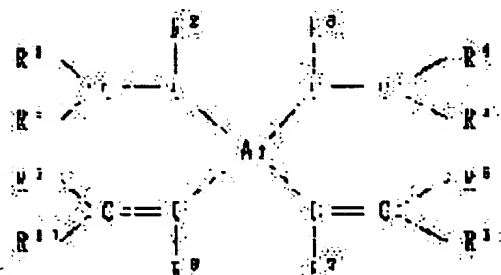
(72)Inventor : AZUMA HISAHIRO
SHOJI HIROSHI
KUSUMOTO TADASHI

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT

(57)Abstract:

PURPOSE: To provide an electroluminescence element excellent in thin film performance capable of generating high brightness emission by containing a tetrafunctional styrene compound of satisfying a specific formula.

CONSTITUTION: When contained a tetrafunctional styrene compound of satisfying a chemical formula as shown by a formula I, an organic electroluminescence element is obtained excellent in thin film performance capable of generating high brightness emission. In the formula, Ar: tetraivalent aromatic hydrocarbon radical of 6 to 20 carbon number, R1 to R8: allyl radical of 6 to 20 carbon number replacing or nonreplacing hydrogen atom or allyl radical of 1 to 6 carbon number, R9 to R12: allyl radical of substitutional group or nonsubstitutional 6 to 20 carbon number or heterocyclic radical of 4 to 18 carbon number.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 08.10.1999

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of

rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japanese Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平6-132080

(43) 公開日 平成6年 (1994) 5月13日

(51) Int. Cl. ⁶

H 0 5 B 33/14

C 0 9 K 11/06

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

Z 9159-4H

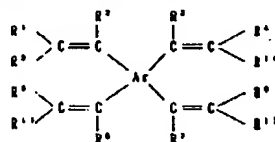
審査請求 未請求 請求項の数 3 (全 24 頁)

(21) 出願番号	特願平4-279669	(71) 出願人	000183646 出光興産株式会社 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
(22) 出願日	平成4年 (1992) 10月19日	(72) 発明者	東 久洋 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内
		(72) 発明者	東海林 弘 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内
		(72) 発明者	楠本 正 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内
		(74) 代理人	弁理士 大谷 保

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【要約】

【目的】 薄膜性に優れ、高輝度発光を可能とする4官能スチリル化合物からなる有機EL素子の開発。



【構成】 一般式 (I)

【化1】

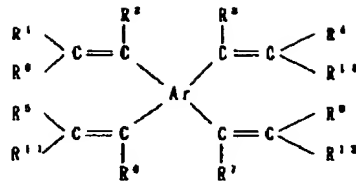
— (I) —

(式中の記号は、明細書に記載の通りである。) で表される4官能スチリル化合物を含有する有機エレクトロル

ミネッセンス素子。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 一般式 (I)



(式中、Arは炭素数6～20の4価の芳香族炭化水素基を示し、R¹～R⁸はそれぞれ水素原子、置換あるいは無置換の炭素数6～20のアリール基、または炭素数1～6のアルキル基を示す。R⁹～R¹²はそれぞれ置換あるいは無置換の炭素数6～20のアリール基、または炭素数4～18の複素環基を示す。ここで、R¹～R¹²は同一でも、互いに異なってもよい。さらに、R¹とR⁹、R¹とR¹⁰、R¹とR¹¹、およびR¹とR¹²はそれぞれ置換している基と結合して置換あるいは無置換の飽和五員環または置換あるいは無置換の飽和六員環を形成してもよい。ここで、置換基としては炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数6～18のアリールオキシ基、フェニル基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲンを示す。これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。)で表される4官能スチリル化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】 請求項1記載の4官能スチリル化合物を、一對の電極間に挟持してなる有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 発光層が、請求項1記載の4官能スチリル化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子(有機EL素子)に関し、詳しくは、薄膜性に優れ、高輝度発光を可能とする4官能スチリル化合物からなる有機EL素子に関する。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】電界発光を利用したEL素子は、自己発光のため視認性が高く、また完全固体素子であるため耐衝撃性に優れるとい

【化1】

... (I)

う特徴を有しており、薄型ディスプレイ素子、液晶ディスプレイのバックライト、平面光源などに用いられている。現在実用化されているEL素子は、分散型EL素子である。この分散型EL素子は、数10V、10kHz以上の交流電圧を必要とするため駆動回路が複雑になっている。一方、有機薄膜EL素子は駆動電圧を10V程度まで低下させることが出来、高輝度に発光するため近年盛んに研究が行われ、多くの有機薄膜EL素子が開発されている(C.W.Tang and S.A.VAN Slyke, Appl. Phys. Lett., vol. 51, pp. 913~915(1987); 特開平6-3-264629号公報)。これらの有機薄膜EL素子は、透明電極/正孔注入層/発光層/背面電極の積層型であり、正孔注入層により効率よく正孔を発光層内へ注入することができる。上記有機薄膜EL素子の構成において、発光層にテトラフェニルブタジエン化合物誘導体を用いた有機EL薄膜素子(特開昭59-194393号公報、特開平4-96990号公報)やスチリル化合物(欧州特許公開第0388768号公報、特開平4-184892号公報、特開平3-205478号公報)を用いたものがある。また、近年上記スチリル化合物より派生した3官能化合物を発光材料として含有する有機EL素子が開示されているが、輝度および発光効率が低いという問題がある。

【0003】

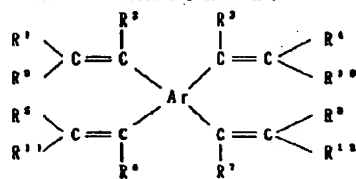
【課題を解決するための手段】そこで、本発明者らは、上記問題点を解決すべく鋭意検討した結果、3官能化合物を改良した4官能化合物を有機EL素子に用いることにより上記問題を解決できることを見出した。

【0004】本発明はかかる知見に基づいて完成したものである。すなわち本発明は、一般式 (I)

【0005】

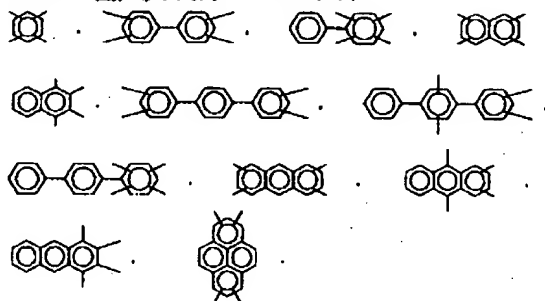
【化2】

... (I)



3

【0006】(式中、Arは炭素数6~20の4価の芳香族炭化水素基を示し、R¹~R⁸はそれぞれ水素原子、置換あるいは無置換の炭素数6~20のアリール基、または炭素数1~6のアルキル基を示す。R⁹~R¹²はそれぞれ置換あるいは無置換の炭素数6~20のアリール基、または炭素数4~18の複素環基を示す。ここで、R¹~R¹²は同一でも、互いに異なっているてもよい。さらに、R¹とR⁹、R¹とR¹⁰、R¹とR¹¹、およびR¹とR¹²はそれぞれ置換している基と結合して置換あるいは無置換の飽和五員環または置換あるいは無置換の飽和六員環を形成してもよい。ここで、置換基としては炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコ



【0009】フェナントレン；ペリレン；1, 2-ベンゾアントラセン；ナフタセン；クリセン；クオターフェニレンなどの4価の芳香族炭化水素であり、単一置換でも複数置換されていてもよい。R¹~R⁸は、例えばフェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、ターフェニル基、アントラル基、フェナントリル基、ピレニル基、ペリレニル基などで表される炭素数6~20のアリール基またはメチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、i-ブチル基、sec-ブチル基、t-ブチル基、i-ペンチル基、t-ペンチル基、ネオペンチル基、n-ヘキシル基、i-ヘキシル基などで表される炭素数1~6のアルキル基である。これらアリール基またはアルキル基は、置換または無置換でもよく、単一置換でも複数置換されていてもよい。R⁹~R¹²は、例えばそれぞれフェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、ターフェニル基、アントラル基、フェナントリル基、ピレニル基、ペリレニル基などで表される炭素数6~20のアリール基またはピラジリル基、ピリジリル基、キノリル基、カルバゾリル基、キノキサリル基などで表される炭素数4~18の複素環基である。これらアリール基または複素環基は、置換または無置換でもよく、単一置換でも複数置換されていてもよい。さらに、R¹とR⁹、R¹とR¹⁰、R¹とR¹¹、およびR¹とR¹²はそれぞれ置換している基と結合して置換あるいは無置換の飽和五員環または置換あるいは無置換の飽和六員

4

キシ基、炭素数6~18のアリールオキシ基、フェニル基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲンを示す。これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。)で表される4官能スチリル化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子を提供するものである。

【0007】本発明は、一般式(I)で表される4官能スチリル化合物を含有する有機EL素子である。ここで、一般式(I)においてArは

10 【0008】

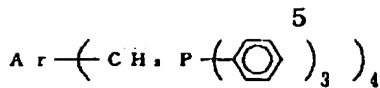
【化3】

環を形成してもよい。ここで、置換基としては例えばメチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、i-ブチル基、sec-ブチル基、t-ブチル基、i-ペンチル基、t-ペンチル基、ネオペンチル基、n-ヘキシル基、i-ヘキシル基などの炭素数1~6のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、i-プロポキシ基、ブチルオキシ基、i-ブチルオキシ基、sec-ブチルオキシ基、i-ペンチルオキシ基、t-ペンチルオキシ基、n-ヘキシルオキシ基などの炭素数1~6のアルコキシ基、フェノキシ基、ナフチルオキシ基など炭素数6~18のアリールオキシ基、フェニル基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲンが挙げられる。

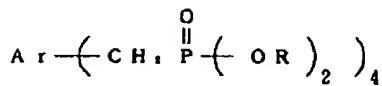
【0010】上記一般式(I)で表される4官能スチリル化合物は、種々の公知の方法によって製造することができる。具体的には、テトラアシル化されたArとトリフェニルホスホニウムハライドを縮合させる方法、テトラアシル化されたArとホスホン酸エステルを縮合させる方法、

【0011】

【化4】

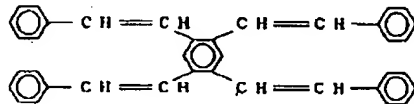


または

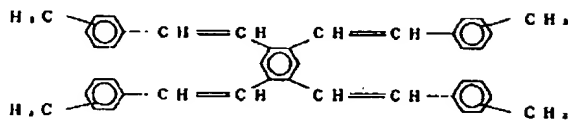


【0012】（式中、Rは炭素数1～4のアルキル基またはフェニル基を示し、Arは前記と同じである。）とカルボニル化合物を塩基存在下で縮合する方法（Wittig反応またはWittig-Horner反応）により合成することができる。この合成で用いる反応溶媒としては、炭化水素、アルコール類、エーテル類が好ましい。具体的には、メタノール；エタノール；イソプロパノール；ブタノール；2-メトキシエタノール；1,2-ジメトキシエタン；ビス（2-メトキシエチル）エーテル；ジオキサン；テトラヒドロフラン；トルエン；

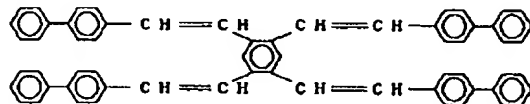
(1)



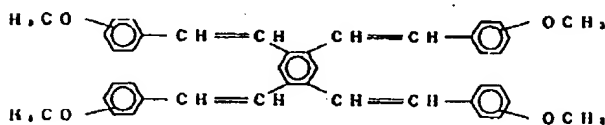
(2)



(3)



(4)



6

キシレン；ジメチルスルホキシド；N, N-ジメチルホルムアミド；N-メチルピロリドン；1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノンなどが挙げられる。特に、テトラヒドロフラン、ジメチルスルホキシドが好適である。また、縮合剤としては苛性ソーダ、苛性カリ、ナトリウムアミド、水素化ナトリウム、n-ブチルリチウム、ナトリウムメチラート、カリウム-t-ブトキシドなどのアルコラートが好ましく、特にn-ブチルリチウム、カリウム-t-ブトキシドが好ましい。反応温度は、用いる反応原料の種類などにより異なり、一義的に定めることはできないが、通常は0℃～約100℃までの広範囲を指定できる。特に好ましくは0℃～室温の範囲である。

【0013】以下に、本発明で用いられる上記4官能スチリル化合物の具体例（1）～（35）を挙げるが、本発明はそれらに限定されるものではない。

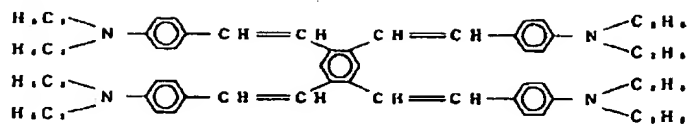
【0014】

【化5】

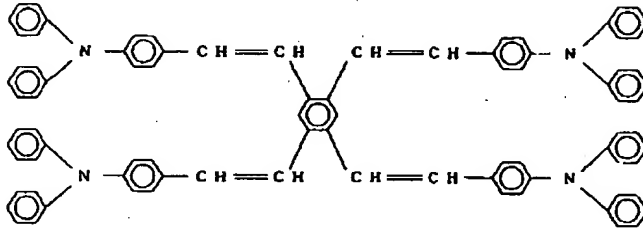
[0015]

[化6]

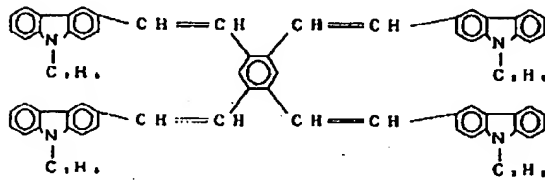
(5)



(6)



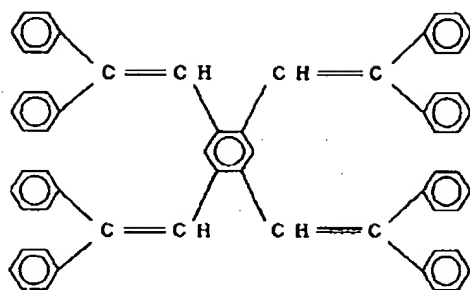
(7)



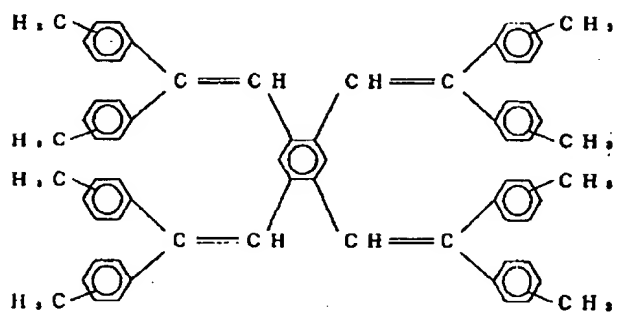
[0016]

[化7]

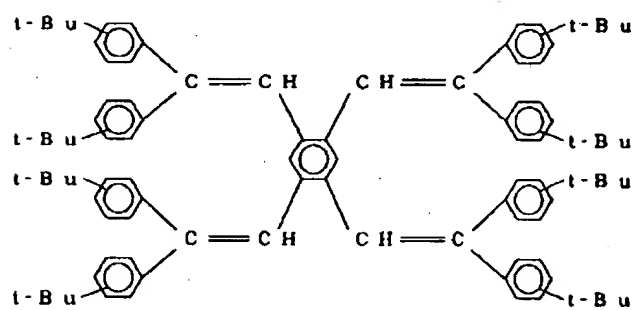
(8)

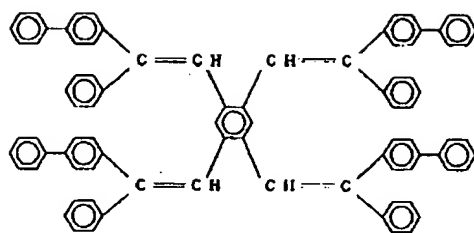


(9)

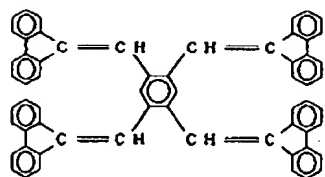


(10)

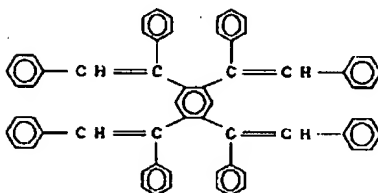


11
(11)

(12)



(13)



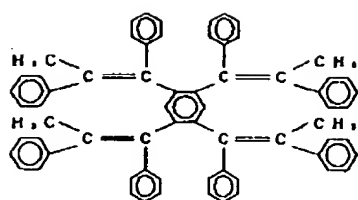
[0018]

【化9】

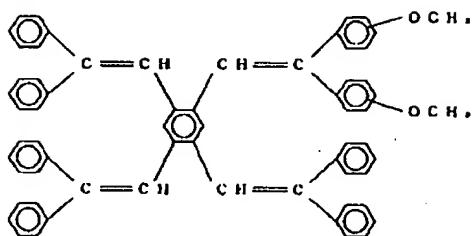
13

14

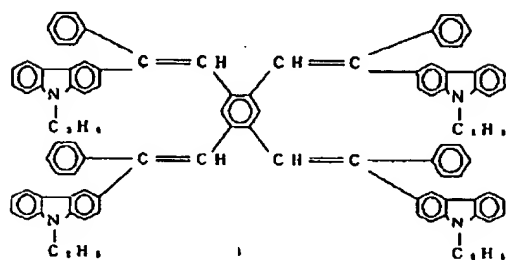
(14)



(15)



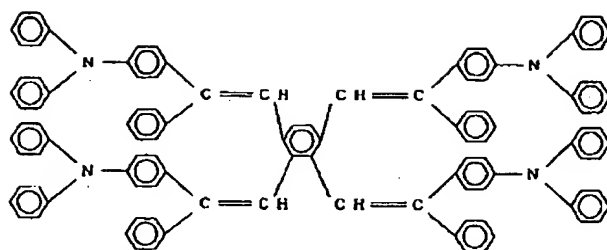
(16)



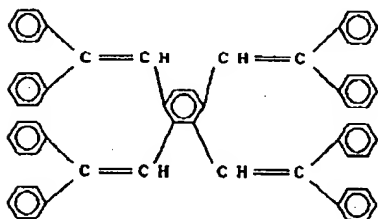
[0019]

[化10]

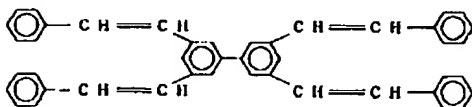
(17)



(18)

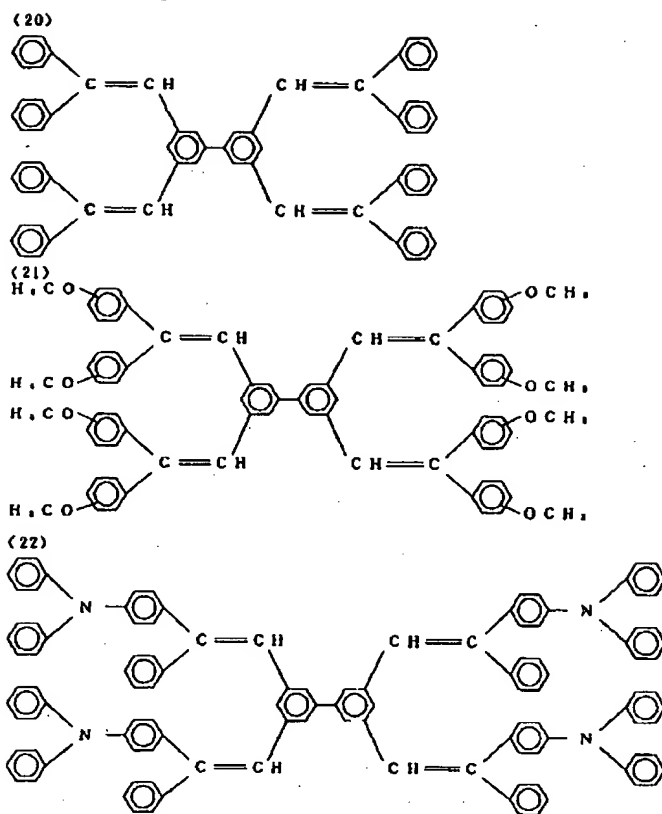


(19)



【0020】

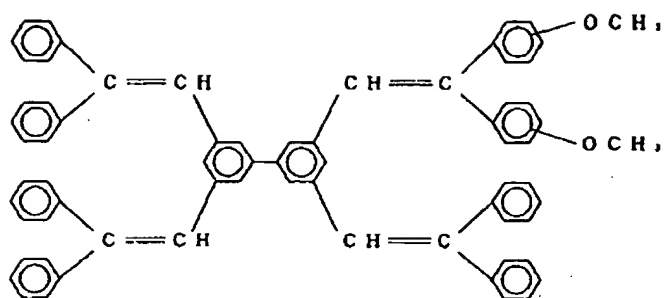
【化11】



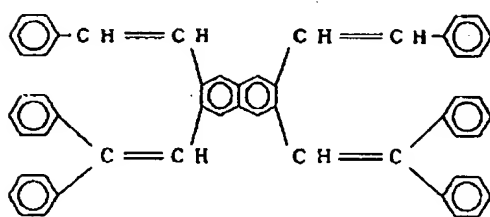
[0021]

[012]

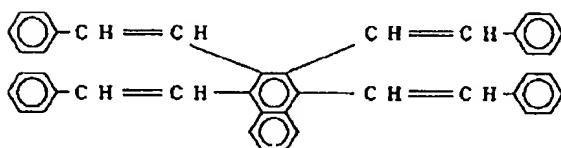
(23)



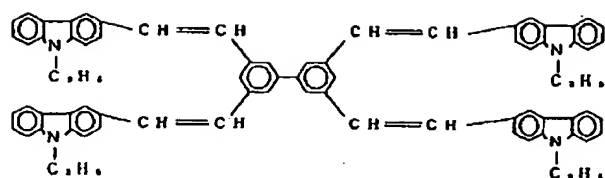
(24)



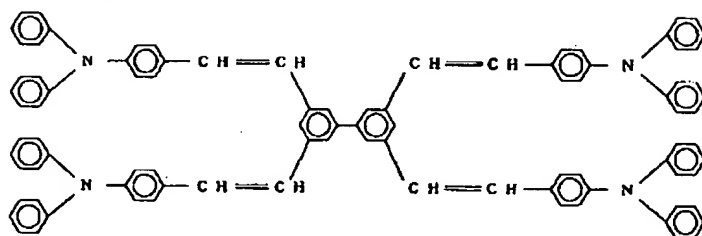
(25)



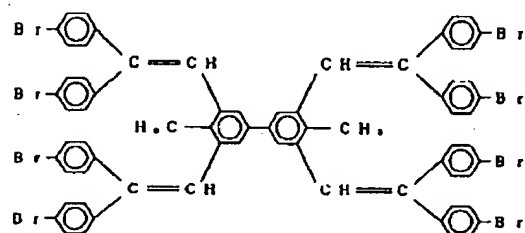
(26)



(27)



(28)



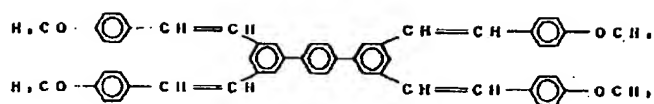
【0023】

【化14】

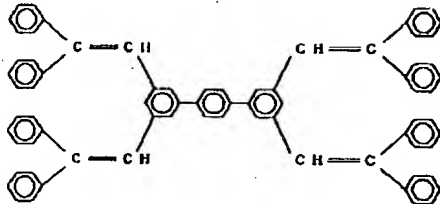
23

24

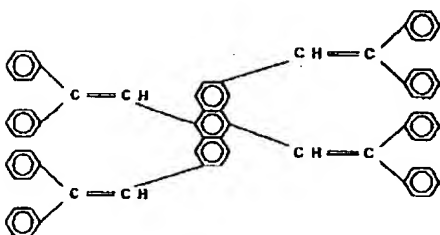
(29)



(30)



(31)

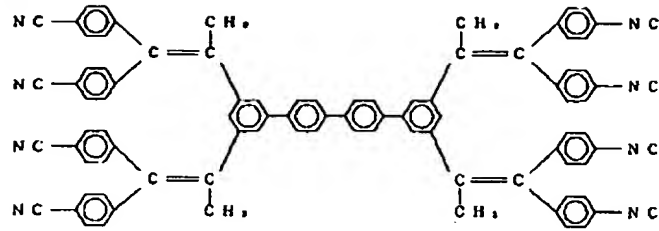


【0024】

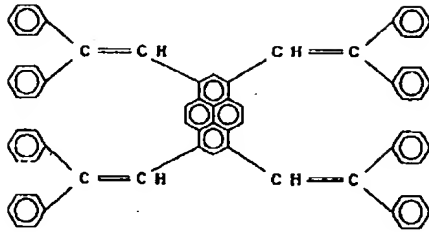
【化15】

25

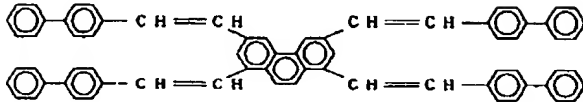
(32)



(33)



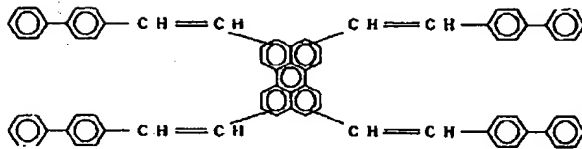
(34)



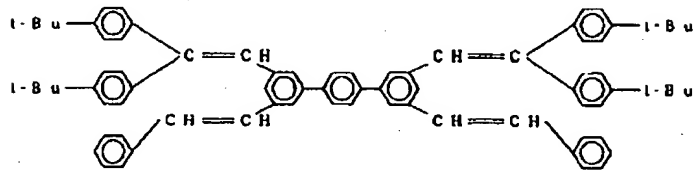
[0025]

[化16]

(35)



(36)



【0026】このようにして得られた本発明の前記一般式(I)で表される4官能スチリル化合物は、EL素子における発光材料または正孔注入輸送材料として有効である。この4官能スチリル化合物を発光層とする場合は、例えば蒸着法、スピンコート法、キャスト法などの公知の方法によって、一般式(I)の4官能スチリル化合物を薄膜化してことにより形成することができるが、特に分子堆積膜とすることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、該化合物の気相状態から沈着され形成された薄膜や、該化合物の溶液状態又は液相状態から固体化され形成された膜のことであり、例えば蒸着膜などを示すが、通常この分子堆積膜はLB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは区別することができる。また、該発光層は、特開昭59-194393号公報などに開示されているように、樹脂などの結着剤と該化合物とを、溶剤に溶かして溶液としたのち、これをスピンコート法などにより薄膜化し、形成することができる。このようにして形成された発光層の膜厚については特に制限はなく、適宜状況に応じて選ぶことができるが、通常5nmないし5 μ mの範囲で選定される。

【0027】このEL素子における発光層は、(1)電界印加時に、陽極又は正孔注入輸送層により正孔を注入することができ、かつ陰極又は電子注入層より電子を注入することができる注入機能、(2)注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる輸送機能、(3)電子と正孔の再結合の場を発光層内部に提供し、これを発光につなげる発光機能などを有している。なお、正孔の注入されやすさと、電子の注入されやすさに違いがあってもよいし、正孔と電子の移動度で表される輸送能に大小があってもよいが、どちらか一方の電荷を移動することが好ましい。この発光層に用いる前記一般式(I)で表される化合物は、一般にイオン化エネルギーが6.0eV程度より小さいので、適当な陽極金属又は陽極化合物を選べば、比較的的正孔を注入しやすい。また電子親和力は2.8eV程度より大きいので、適当な陰極金属又は陰極化合物を選べば、比較的電子を注入しやすい上、電子、正孔の輸送能力も優れている。さらに固体状態の蛍光性が強いので、該化合物やその会合体又は結晶などの電子と正孔の再結晶時に形成された励起状態を光に変換する能力が大きい。

【0028】本発明の化合物を用いたEL素子の構成は、各種の態様があるが、基本的には、一対の電極(陽極と陰極)間に、前記発光層を挟持した構成とし、これに必要に応じて、正孔注入輸送層や電子注入層を介在させればよい。介在方法としては、ポリマーへの混ぜ込みや同時求着がある。具体的には(1)陽極/発光層/陰極、(2)陽極/正孔注入輸送層/発光層/陰極、

(3)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入層/陰極、(4)陽極/発光層/電子注入層/陰極などの構成を挙げることができる。該正孔注入輸送層や電子注入層

は、必ずしも必要ではないが、これらの層があると発光性能が一段と向上する。また、前記構成の素子においては、いずれも基板に支持されていることが好ましく、該基板については特に制限はなく、従来EL素子に慣用されているもの、例えばガラス、透明プラスチック、石英などから成るものを用いることができる。

【0029】このEL素子における陽極としては、仕事関数の大きい(4eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としてはAuなどの金属、CuI、ITO、SnO₂、ZnOなどの誘電性透明材料が挙げられる。該陽極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより作製することができる。この電極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また、電極としてのシート抵抗は数百 Ω /□以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10nmないし1 μ m、好ましくは10~200nmの範囲で選ばれる。

【0030】一方、陰極としては、仕事関数の小さい(4eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、Al/AlO₃、インジウムなどが挙げられる。該陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、電極としてのシート抵抗は数百 Ω /□以下が好ましく、膜厚は通常10nmないし1 μ m、好ましくは50~200nmの範囲で選ばれる。なお、このEL素子においては、該陽極又は陰極のいずれか一方が透明又は半透明であることが、発光を透過するため、発光の取出し効率がよく好都合である。

【0031】本発明の化合物を用いるEL素子の構成は、前記したように、各種の態様があり、前記(2)又は(3)の構成のEL素子における正孔注入輸送層は、正孔伝達化合物からなる層であって、陽極より注入された正孔を発光層に伝達する機能を有し、この正孔注入輸送層を陽極と発光層との間に介在させることにより、より低い電界で多くの正孔が発光層に注入される。その上、発光層に陰極又は電子注入層より注入された電子は、発光層と正孔注入輸送層の界面に存在する電子の障壁により、この発光層内の界面付近に蓄積されEL素子の発光効率を向上させ、発光性能の優れたEL素子とする。

【0032】前記正孔注入輸送層に用いられる正孔伝達化合物は、電界を与えられた2個の電極間に配置されて陽極から正孔が注入された場合、該正孔を適切に発光層へ伝達しうる化合物であって、例えば10⁴~10⁶V

／cmの電界印加時に、少なくとも $10^{-8} \text{ cm}^2 / (\text{V} \cdot \text{秒})$ の正孔移動度をもつものが好適である。このような正孔伝達化合物については、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導電材料において、正孔の電荷輸送材として慣用されているものやEL素子の正孔注入輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0033】該電荷輸送材としては、例えばトリアゾール誘導体（米国特許第3,112,197号明細書などに記載のもの）、オキサジアゾール誘導体（米国特許第3,189,447号明細書などに記載のもの）、イミダゾール誘導体（特公昭37-16096号公報などに記載のもの）、ポリアリールアルカン誘導体（米国特許第3,615,402号明細書、同3,820,989号明細書、同3,542,544号明細書、特公昭45-555号公報、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報などに記載のもの）、ピラゾリン誘導体及びピラズロン誘導体（米国特許第3,180,729号明細書、同4,278,746号明細書、特開昭55-88064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同56-80051号公報、同56-88141号公報、同57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報などに記載のもの）、フェニレンジアミン誘導体（米国特許第3,615,404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報などに記載のもの）、アリールアミン誘導体（米国特許第3,567,450号明細書、同3,180,703号明細書、同3,240,597号明細書、同3,658,520号明細書、同4,232,103号明細書、同4,175,961号明細書、同4,012,376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1,110,518号明細書などに記載のもの）、アミノ置換カルコン誘導体（米国特許第3,526,501号明細書などに記載のもの）、オキサゾール誘導体（米国特許第3,257,203号明細書などに記載のもの）、スチリルアントラセン誘導体（特開昭56-46234号公報などに記載のもの）、フルオレノン誘導体（特開昭54-110837号公報などに記載のもの）、ヒドラゾン誘導体（米国特許第3,717,462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749

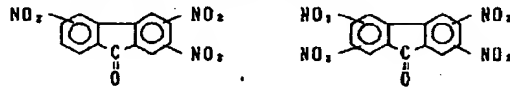
号公報などに記載されているもの）、スチルベル誘導体（特開昭61-210363号公報、同61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93445号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報などに記載のもの）などを挙げることができる。

10 【0034】これらの化合物を正孔伝達化合物として使用することができるが、次に示すボルフィリン化合物（特開昭63-295695号公報などに記載のもの）及び芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物（米国特許第4,127,412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295695号公報などに記載のもの）、特に該芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

【0035】該ボルフィリン化合物の代表例としては、ボルフィリン；5, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ボルフィリン銅 (II)；5, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ボルフィリン亜鉛 (II)；5, 10, 15, 20-テトラキス（ペンタフルオロフェニル）-21H, 23H-ボルフィリン；シリコンフタロシアニンオキシド；アルミニウムフタロシアニンクロリド；フタロシアニン（無金属）；ジリチウムフタロシアニン；銅テトラメチルフタロシアニン；銅フタロシアニン；クロムフタロシアニン；亜鉛フタロシアニン；鉛フタロシアニン；チタニウムフタロシアニンオキシド；マグネシウムフタロシアニン；銅オクタメチルフタロシアニンなどが挙げられる。また該芳香族第三級化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N'-テトラフェニル-（1, 1'-ビフェニル）-4, 4'-ジアミン；N, N'-ビス（3-メチルフェニル）-N, N'-ジフェニル-（1, 1'-ビフェニル）-4, 4'-ジアミン；2, 2-ビス（4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル）プロパン；1, 1-ビス（4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル）シクロヘキサン；N, N, N', N'-テトラ-*p*-トリル-（1, 1'-ビフェニル）-4, 4'-ジアミン；1, 1-ビス（4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル）-4-フェニルシクロヘキサン；ビス（4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル）フェニルメタン；ビス（4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル）フェニルメタン；N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ（4-メトキシフェニル）-（1, 1'-ビフェニル）-4, 4'-ジアミン；N, N, N', N'-テトラフ

エニル-4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル; 4, 4'-ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル; N, N, N-トリ(p-トリル)アミン; 4-(ジ-p-トリルアミン)-4'-[4(ジ-p-トリルアミン)スチリル]スチルベン; 4-N, N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルピニル)ベンゼン; 3-メトキシ-4'-N, N-ジフェニルアミノスチルベン; N-フェニルカルバゾールなどが挙げられる。

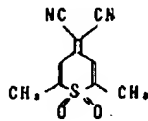
【0036】上記EL素子における該正孔注入輸送層は、これらの正孔伝達化合物一種又は二種以上からなる一層で構成されてもよいし、あるいは、前記層とは別種



【0038】などのニトロ置換フルオレノン誘導体、

【0039】

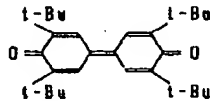
【化18】



【0040】などのチオピランジオキシド誘導体、

【0041】

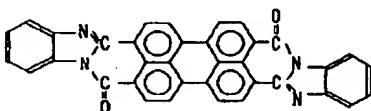
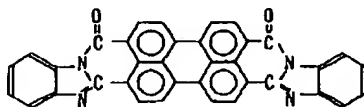
【化19】



【0042】などのジフェニルキノン誘導体〔「ポリマー・プレプリント(Polymer Preprints), ジャパン」第37巻, 第3号, 第681ページ(1988年)などに記載のもの〕、あるいは

【0043】

【化20】



の化合物からなる正孔注入輸送層を積層したものであってもよい。一方、前記(3)の構成のEL素子における電子注入層(電子注入輸送層)は、電子伝達化合物からなるものであって、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有している。このような電子伝達化合物について特に制限はなく、従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。該電子伝達化合物の好ましい例としては、

【0037】

10 【化17】

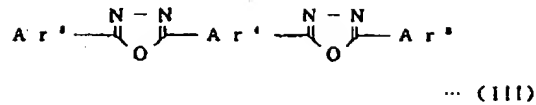
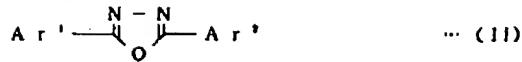
【0044】などの化合物〔「ジャーナル・オブ・アプライド・フィジックス(J. Apply. Phys.)」第27巻, 第269頁(1988年)などに記載のもの〕や、アントラキノジメタン誘導体(特開昭57-149259号公報, 同58-55450号公報, 同61-225151号公報, 同61-233750号公報, 同63-104061号公報などに記載のもの)、フレオレニリデンメタン誘導体(特開昭60-69657号公報, 同61-143764号公報, 同61-148159号公報などに記載のもの)、アントロン誘導体(特開昭61-225151号公報, 同61-233750号公報などに記載のもの)また、次の一般式(II)又は(III)

【0045】

【化21】

33

34

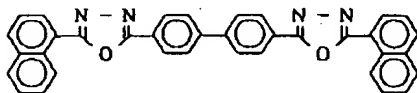
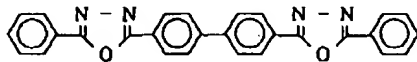
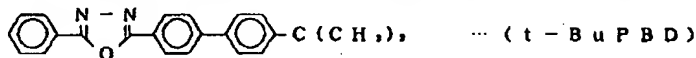


【0046】（式中、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^3$ 及び Ar^5 はそれぞれ独立に置換又は無置換のアリール基を示し、 Ar^4 は置換又は無置換のアリーレン基を示す。）で表される電子伝達化合物が挙げられる。ここで、アリール基としてはフェニル基、ナフチル基、ピフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基等が挙げられ、アリーレン基としてはフェニレン基、ナフチレン基、ピフェニレン基、アントラセニレン基、ペリレニレン基、ピレ

10 ニレン基等が挙げられる。また、置換基としては炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。この一般式 (II) 又は (III) で表される化合物は、薄膜形成性のものが好ましい。一般式 (II) 又は (III) で表される化合物の具体例としては、

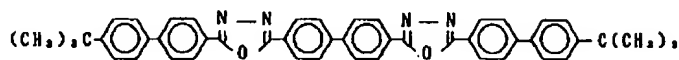
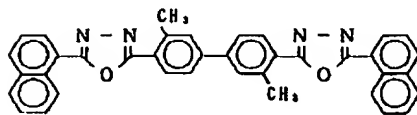
【0047】

【化22】



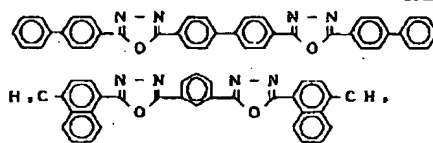
【0048】

【化23】



【0049】

【化24】



【0050】等が挙げられる。

【0051】「Appl. Phys. Lett.」第55巻、第148

9ページ（1989年）に開示されているオキサジアゾール誘導体などを挙げることができる。なお、正孔注入

輸送層及び電子注入層は電化の注入性、輸送性、障壁性のいずれかを有する層であり、上記した有機材料の他に Si 系、SiC 系、CdS 系などの結晶性ないし非結晶性材料などの無機材料を用いることもできる。有機材料を用いた正孔注入輸送層及び電子注入層は発光層と同様にして形成することができ、無機材料を用いた正孔注入輸送層及び電子注入層は真空蒸着法やスパッタリングなどにより形成できるが、有機及び無機のいずれの材料を用いた場合でも発光層のときと同様の理由から真空蒸着法により形成することが好ましい。

【0052】次に、本発明の化合物を用いた EL 素子を作製する好適な方法の例を、各構成の素子それぞれについて説明する。前記の陽極／発光層／陰極からなる EL 素子の作製法について説明すると、まず適当な基板上に、所望の電極物質、例えば陽極用物質からなる薄膜を、 $1\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $10\sim 200\text{nm}$ の範囲の膜厚になるように、蒸着やスパッタリングなどの方法により形成させ、陽極を作製したのち、この上に発光材料である一般式 (I) で表される 4 官能スチリル化合物化合物の薄膜を形成させ、発光層を設ける。該発光材料の薄膜化の方法としては、例えばスピコート法、キャスト法、蒸着法などがあるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくいなどの点から、蒸着法が好ましい。該発光材料の薄膜化に、この蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は、使用する発光層に用いる有機化合物の種類、分子堆積膜の目的とする結晶構造、会合構造などにより異なるが、一般にポート加熱温度 $50\sim 400^\circ\text{C}$ 、真空度 $10^{-5}\sim 10^{-3}\text{Pa}$ 、蒸着速度 $0.01\sim 50\text{nm/sec}$ 、基板温度 $-50\sim +300^\circ\text{C}$ 、膜厚 5nm ないし $5\mu\text{m}$ の範囲で適宜選ぶことが望ましい。次にこの発光層の形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、 $1\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $50\sim 200\text{nm}$ の範囲の膜厚になるように、例えば蒸着やスパッタリングなどの方法により形成させ、陰極を設けることにより、所望の EL 素子が得られる。なお、この EL 素子の作製においては、作製順序を逆にして、陰極、発光層、陽極の順に作製することも可能である。

【0053】また、一对の電極間に正孔注入輸送材料、発光材料、電子注入材料を混合させた形で電極間に挟持させ発光層とした、陽極／発光層／陰極からなる素子の場合の作製方法としては、例えば適当な基板の上に、陽極用物質からなる薄膜を形成し、正孔注入輸送材料、発光材料、電子注入材料、ポリビニルカルバノール等の結着剤等からなる溶液を塗布するか、又はこの溶液から浸

漬塗工法により薄膜を形成させ発光層とし、その上に陰極用物質からなる薄膜を形成させるものがある。ここで、作製した発光層上に、さらに発光層の材料となる素子材料を真空蒸着し、その上に陰極用物質からなる薄膜を形成させてもよい。あるいは、正孔注入輸送材料、電子注入材料および発光材料を同時蒸着させ発光層とし、その上に陰極用物質からなる薄膜を形成させてもよい。

【0054】次に、陽極／正孔注入輸送層／発光層／陰極から成る EL 素子の作製法について説明すると、まず、陽極を前記の EL 素子の場合と同様にして形成したのち、その上に、正孔伝達化合物から成る薄膜をスピコート法などにより形成し、正孔注入輸送層を設ける。この際の条件は、前記発光材料の薄膜形成の条件に準じればよい。次に、この正孔注入輸送層の上に、順次発光層及び陰極を、前記 EL 素子の作製の場合と同様にして設けることにより、所望の EL 素子が得られる。なお、この EL 素子の作製においても、作製順序を逆にして、陰極、発光層、正孔注入輸送層、陽極の順に作製することも可能である。さらに、陽極／正孔注入輸送層／発光層／電子注入層／陰極から成る EL 素子の作製法について説明すると、まず、前記の EL 素子の作製の場合と同様にして、陽極、正孔注入輸送層、発光層を順次設けたのち、この発光層の上に、電子伝達化合物から成る薄膜をスピコート法などにより形成して、電子注入層を設け、次いでこの上に、陰極を前記 EL 素子の作製の場合と同様にして設けることにより、所望の EL 素子が得られる。なお、この EL 素子の作製においても、作製順序を逆にして、陽極、電子注入層、発光層、正孔注入輸送層、陽極の順に作製してもよい。

【0055】このようにして得られた本発明の有機 EL 素子に、直流電圧を印加する場合には、陽極を +、陰極を - の極性として電圧 $1\sim 30\text{V}$ 程度を印加すると、発光が透明又は半透明の電極側より観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れず発光は全く生じない。さらに、交流電圧を印加する場合には、陽極が +、陰極が - の状態になったときのみ発光する。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

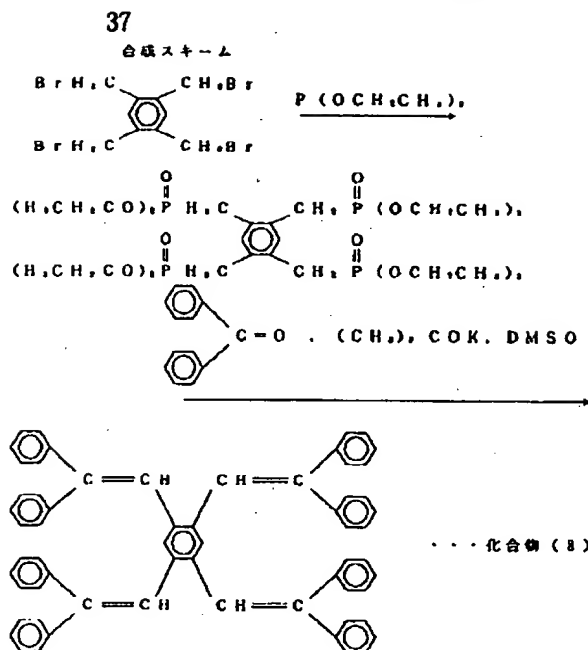
【0056】

【実施例】次に本発明を、合成例、実施例及び比較例によりさらに詳しく説明する。

合成例 1

【0057】

【化25】



【0058】1, 2, 4, 5-テトラキス(ブロモメチル)ベンゼン25.0g (0.056モル, Aldrich製)と亜リン酸トリエチル44.7g (0.269モル)を内温130℃で反応させた。反応終了後、n-ヘキサン50ミリリットルで洗浄後、一晩放置すると白色沈澱を生じた。得られた白色沈澱は、収量36.5g (収率94%)、融点49~52.5℃であった。また、プロトン核磁気共鳴 (¹H-NMR, 基準: テトラメチルシラン (TMS), 溶媒: CDCl₃) 測定の結果、
 $\delta=7.1$ ppm (s, 2H, 中心の芳香環のH)
 $\delta=4.0$ ppm (q, 16H, エトキシ基の-CH₂-のH)
 $\delta=3.35$ ppm (d, 8H, ³¹P-CH₂ カップリングのH, J=20Hz)
 $\delta=1.20$ ppm (t, 24H, エトキシ基の-CH₃のH)
 であった。次に、このホスホン酸エステル2.0g (0.003モル)、ベンゾフェノン2.8g (0.015モル)およびカリウム-t-ブトキシド2.1g (0.013モル)をジメチルスルホキシド(DMSO)30ミリリットルに懸濁し、室温(18~19℃)にて反応させた。得られた反応物を一晩放置後、メタノール50ミリリットルを

添加し、析出した黄色粉末を濾過して得られた濾塊をシリカゲルカラムにて精製した。その結果得られた黄色粉末は、収量0.9g (収率38%)、融点231.5~232.5℃であった。また、¹H-NMR (基準: テトラメチルシラン (TMS), 溶媒: CDCl₃) 測定の結果、

$\delta=7.1$ ppm (s, 40H, 末端フェニルのH)
 $\delta=6.6$ ppm (s, 2H, 中心フェニレンのH)
 $\delta=6.7$ ppm (s, 4H, オレフィンのH)
 であった。

質量分析の結果、

m/Z=790 (M⁺) であった。

さらに元素分析の結果 (() は計算値)、C₂₆H₂₆として

C: 94.03% (94.14%)

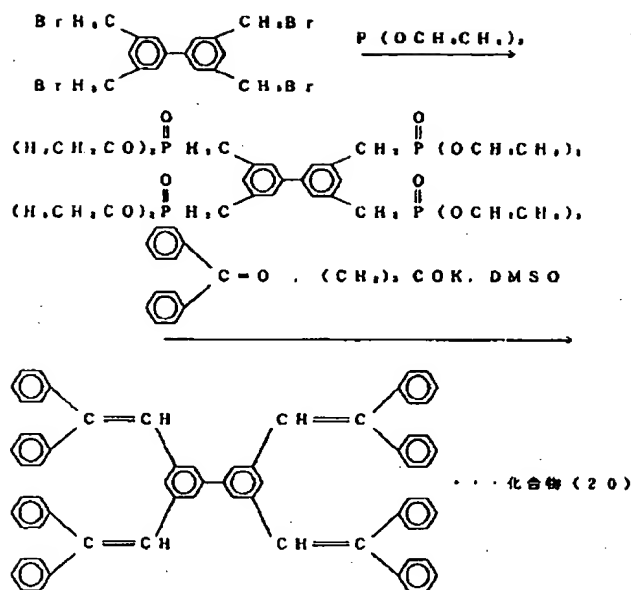
H: 5.97% (5.86%)

であった。以上から、目的の4官能スチリル化合物(8)が合成されていることが確認された。

【0059】合成例2

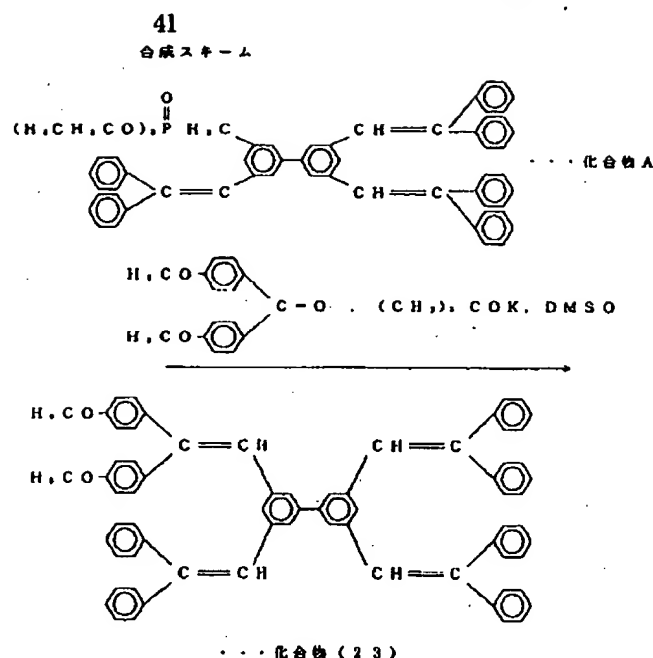
【0060】

【化26】

39
合成スキーム

【0061】 3, 3', 5, 5'-テトラキス(プロモメチル) ビフェニル 10.5 g (0.020 モル) と亜リン酸トリエチル 17.28 g (0.10 モル) を内温 110℃ で反応させた。反応終了後、n-ヘキサン 50 ミリリットルで洗浄すると透明な粘調液体 15.5 g (定量的) が得られた。また、¹H-NMR (基準: テトラメチルシラン (TMS), 溶媒: CDCl₃) 測定の結果、
 $\delta = 7.3$ ppm (s, 4H, 中心のビフェニレン環の H)
 $\delta = 7.1$ ppm (s, 2H, 中心のビフェニレン環の H)
 $\delta = 4.0$ ppm (q, 16H, エトキシ基の -CH₂- の H)
 $\delta = 3.1$ ppm (d, 8H, ³¹P-CH₂ カップリングの H, J=20 Hz)
 $\delta = 1.2$ ppm (t, 24H, エトキシ基の -CH₃- の H)
 であった。次に、このホスホン酸エステル 2.5 g (0.0033 モル), ベンゾフェノン 3.13 g (0.017 モル) およびカリウム-*t*-ブトキシド 1.7 g (0.015 モル) をジメチルスルホキシド 35 ミリリットルに懸濁し、室温 (18~19℃) にて反応させた。得られた反

応物を一晩放置後、メタノール 50 ミリリットルを添加し、析出した黄色粉末を濾過して得られた濾塊をシリカゲルカラムにて精製した。その結果得られた白色粉末は、収量 0.81 g (収率 28%), 融点 223~225℃ であった。また、¹H-NMR (基準: テトラメチルシラン (TMS), 溶媒: CDCl₃) 測定の結果、
 $\delta = 7.2$ ppm (s, 40H, 末端フェニルの H)
 $\delta = 6.5 \sim 7.2$ ppm (m, 10H, 中心ビフェニレンおよびビニルの H)
 であった。
 質量分析の結果、
 $m/Z = 866$ (M⁺) であった。
 さらに元素分析の結果 () は計算値、C₆₈H₅₀ として
 C: 94.07% (94.19%)
 H: 5.93% (5.81%)
 であった。以上から、目的の 4 官能スチリル化合物 (20) が合成されていることが確認された。
 【0062】 合成例 3
 【0063】
 【化 27】



【0064】合成物2の反応の副生物として上記化合物Aが1.06g得られた。化合物Aの性状は白色粉末で、融点は177~178℃であった。また、¹H-NMR (基準：テトラメチルシラン (TMS)，溶媒：CDCl₃) 測定の結果、

δ=7.2 ppm (s, 30H, 末端フェニル基のH)
 δ=6.6~6.9 ppm (m, 9H, 中心のビフェニレン環およびビニルのH)
 δ=3.9 ppm (q, 2H, エトキシ基の-CH₂-のH)
 δ=2.8 ppm (d, 2H, ³¹P-CH₂ カップリングのH, J=20Hz)
 δ=1.2 ppm (t, 3H, エトキシ基の-CH₃ のH)

であった。

また、質量分析の結果、

m/Z=838 (M⁺) であったことより、化合物Aが合成されていることが確認された。次に、このホスホン酸エステルである化合物A1.0g (0.0012モル)、4,4'-ジメトキシベンゾフェノン0.38g (0.0016モル)、およびカリウム-t-ブトキシド0.22g (0.002モル) をジメチルスルホキシド (DMSO) 30ミリリットルに懸濁し、室温 (18~20℃) にて反応さ

せた。得られた反応物を一晩放置後、メタノール50ミリリットルを添加し、析出した白色粉末を濾過して得られた濾塊をシリカゲルカラムにて精製した。その結果得られた白色板状晶は、収量0.23g (収率21%)、融点138~147℃であった。また、¹H-NMR (基準：テトラメチルシラン (TMS)，溶媒：CDCl₃) 測定の結果、

δ=7.2 ppm (s, 38H, 末端フェニル基のH)
 δ=6.4~7.2 ppm (m, 10H, 中心ビフェニレンおよびビニルのH)
 δ=3.6 ppm (d, 6H, メトキシ基のH)

であった。

40 質量分析の結果、

m/Z=926 (M⁺) であった。

以上から、目的の4官能スチリル化合物 (23) が合成されていることが確認された。

【0065】実施例1

25mm×75mm×1.1mmのガラス基板上に蒸着法により厚さ100nmのITO膜 (陽極に相当) を設けたものを透明支持基板とした。この透明支持基板をイソプロピルアルコールで5分間超音波洗浄し、さらに純水中で5分間超音波洗浄した後、UVイオン洗浄器 (サムコインターナショナル社製) にて基板温度150℃で20分間

50

洗浄した。この透明支持基板を乾燥窒素ガスで乾燥して市販の蒸着装置（日本真空技術（株）製）の基板ホルダーに固定し、モリブテン製の抵抗加熱ポートにCu配位のフタロシアニン（以下、CuPcと略す。）を200mg入れ、また別のモリブテン製ポートの抵抗加熱にN, N'-ビス（3-メチルフェニル）-N, N'-ジフェニル-〔1, 1'-ビフェニル〕-4, 4'-ジアミン（以下、TPDと略す。）を200mg入れ、さらに別のモリブテン製の抵抗加熱ポートに合成例1で得られた化合物（8）で表される1, 2, 4, 5-テトラキス（2, 2-ジフェニルビニル）ベンゼン（以下、（DPV）, Bと略す。）を200mg入れた。次いで、真空層を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、CuPcの入った前記加熱ポートに通電して350℃まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3 nm/秒で透明支持基板上に蒸着して膜厚20 nmのCuPc層を設けた。このときの基板温度は室温であった。そして、TPDの入った前記加熱ポートに通電して215℃まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3 nm/秒で上記CuPc層の上にTPDを蒸着して膜厚40 nmのTPD層を設けた。このときの基板温度も室温であった。このようにして設けたCuPc層とTPD層の2層が、正孔注入輸送層に該当する。次いで、（DPV）, Bの入った前記加熱ポートに通電して250℃まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3 nm/秒で上記TPD層の上に蒸着して膜厚40 nmの発光層を設けた。次に、これ3層の有機物層を積層した透明支持基板を真空槽から取り出し、発光槽の上にステンレススチール製のマスクを配置して再び基板ホルダーに固定した。次いで、モリブデン製の抵抗加熱ポートにトリス（8-キノリノール）アルミニウム（以下、Alq₃と略す。）を200mgを入れて真空槽に蒸着した。さらに、マグネシウムリボン1gを入れたモリブデン製の抵抗加熱ポートと銀ワイヤー500mgを入れたタングステン製バスケットとを真空槽に装着した。その後、真空槽を 1×10^{-4} Paまで減圧した。減圧後、Alq₃を入れたポートを270℃まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3 nm/秒で発光層上にAlq₃を蒸着して膜厚40 nmのAlq₃層（電子注入層に相当）を設けた。続けて、銀ワイヤー入りのバスケットに通電して蒸着速度0.1 nm/秒で銀を蒸着させると同時にマグネシウムリボン入りのポートに通電して蒸着速度1.4~2.0 nm/秒でマグネシウムを蒸着した。この二元同時蒸着により、Alq₃層上に膜厚20 nmのマグネシウム-銀層（陰極に相当）が形成された。この素子のITO電極を陽極とし、マグネシウム-銀層を陰極として、直流10 Vを印加したところ、電流密度が77ミリアンペア/cm²の電流が流れ、ピーク波長494 nmのBlue Greenの発光を得た。このときの輝度は250 cd/m²であり、発光効率は0.60ルーメン/Wであった。得られた発光は、（DPV）, Bの固体蛍光とほぼ一致することから

（DPV）, Bからの発光と確認された。

【0066】実施例2

25mm×75mm×1.1mmのガラス基板上に蒸着法により厚さ100 nmのITO膜（陽極に相当）を設けたものを透明支持基板とした。この透明支持基板をイソプロピルアルコールで5分間超音波洗浄し、さらに純水中で5分間超音波洗浄した後、UVイオン洗浄器（サムコインターナショナル社製）にて基板温度150℃で20分間洗浄した。この透明支持基板を乾燥窒素ガスで乾燥して市販の蒸着装置（日本真空技術（株）製）の基板ホルダーに固定し、モリブテン製の抵抗加熱ポートにCuPcを200mg入れ、また別のモリブテン製ポートの抵抗加熱にTPDを200mg入れ、さらに別のモリブテン製の抵抗加熱ポートに合成例2で得られた化合物（20）で表される3, 3', 5, 5'-テトラキス（2, 2-ジフェニルビニル）ビフェニル（以下、（DPV）, Biと略す。）を200mg入れた。次いで、真空層を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、CuPcの入った前記加熱ポートに通電して350℃まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3 nm/秒で透明支持基板上に蒸着して膜厚20 nmのCuPc層を設けた。このときの基板温度は室温であった。そして、TPDの入った前記加熱ポートに通電して215℃まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3 nm/秒で上記CuPc層の上にTPDを蒸着して膜厚40 nmのTPD層を設けた。このときの基板温度も室温であった。このようにして設けたCuPc層とTPD層の2層が、正孔注入輸送層に該当する。次いで、（DPV）, Biの入った前記加熱ポートに通電して296℃まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3 nm/秒で上記TPD層の上に蒸着して膜厚40 nmの発光層を設けた。次に、これ3層の有機物層を積層した透明支持基板を真空槽から取り出し、発光槽の上にステンレススチール製のマスクを配置して再び基板ホルダーに固定した。次いで、モリブデン製の抵抗加熱ポートにAlq₃を200mgを入れて真空槽に蒸着した。さらに、マグネシウムリボン1gを入れたモリブデン製の抵抗加熱ポートと銀ワイヤー500mgを入れたタングステン製バスケットとを真空槽に装着した。その後、真空槽を 1×10^{-4} Paまで減圧した。減圧後、Alq₃を入れたポートを270℃まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3 nm/秒で発光層上にAlq₃を蒸着して膜厚40 nmのAlq₃層（電子注入層に相当）を設けた。続けて、銀ワイヤー入りのバスケットに通電して蒸着速度0.1 nm/秒で銀を蒸着させると同時にマグネシウムリボン入りのポートに通電して蒸着速度1.4~2.0 nm/秒でマグネシウムを蒸着した。この二元同時蒸着により、Alq₃層上に膜厚20 nmのマグネシウム-銀層（陰極に相当）が形成された。この素子のITO電極を陽極とし、マグネシウム-銀層を陰極として、直流10 Vを印加したところ、電流密度が12ミリアンペア/cm²の電流が流れ、ピ

ーク波長462nmのBlueの発光を得た。このときの輝度は 240cd/m^2 であり、発光効率は0.64ルーメン/Wであった。得られた発光は、(DPV)、Biの固体蛍光とほぼ一致することから(DPV)、Biからの発光と確認された。

【0067】実施例3

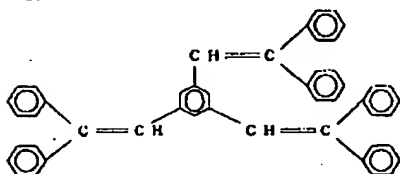
実施例2で発光層として用いた化合物(20)の代わりに合成例3で得られた化合物(23)で表される3-(2,2-ジ(4-メトキシフェニル)ビニル-3',5,5'-トリス(2,2-ジフェニルビニル)ピフェニル(以下、(DM-DPV)、Biと略す。)を用い、この化合物の蒸着の際のポート温度を328℃に変えた以外は、実施例2と同様に操作を行った。得られた素子のITO電極を陽極とし、マグネシウム-銀層を陰極として、直流10Vを印加したところ、電流密度が13ミリアンペア/cm²の電流が流れ、ピーク波長485nmのGreenish Blueの発光を得た。このときの輝度は 214cd/m^2 であり、発光効率は0.52ルーメン/Wであった。得られた発光は、(DM-DPV)、Biの固体蛍光とほぼ一致することから(DM-DPV)、Biからの発光と確認された。

【0068】比較例1

25mm×75mm×1.1mmのガラス基板上に蒸着法により厚さ100nmのITO膜(陽極に相当)を設けたものを透明支持基板とした。この透明支持基板をイソプロピルアルコールで5分間超音波洗浄し、さらに純水中で5分間超音波洗浄した後、UVイオン洗浄器(サムコインターナショナル社製)にて基板温度150℃で20分間洗浄した。この透明支持基板を乾燥窒素ガスで乾燥して市販の蒸着装置(日本真空技術(株)製)の基板ホルダーに固定し、モリブデン製の抵抗加熱ポートにCuPcを200mg入れ、また別のモリブデン製ポートの抵抗加熱にTPDを200mg入れ、さらに別のモリブデン製の抵抗加熱ポートに比較例として合成した1,3,5-トリス(2,2-ジフェニルビニル)ピフェニル

【0069】

【化28】



【0070】(以下、(DPV)、Bと略す。)を200mg入れた。次いで、真空槽を $4 \times 10^{-4}\text{Pa}$ まで減

圧した後、CuPcの入った前記加熱ポートに通電して350℃まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3nm/秒で透明支持基板上に蒸着して膜厚20nmのCuPc層を設けた。このときの基板温度は室温であった。そして、TPDの入った前記加熱ポートに通電して215℃まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3nm/秒で上記CuPc層の上にTPDを蒸着して膜厚40nmのTPD層を設けた。このときの基板温度も室温であった。このようにして設けたCuPc層とTPD層の2層が、正孔注入輸送層に該当する。次いで、(DPV)、Bの入った前記加熱ポートに通電して245℃まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3nm/秒で上記TPD層の上に蒸着して膜厚40nmの発光層を設けた。次に、これ3層の有機物層を積層した透明支持基板を真空槽から取り出し、発光槽の上にステンレススチール製のマスクを配置して再び基板ホルダーに固定した。次いで、モリブデン製の抵抗加熱ポートにAlq₃を200mgを入れて真空槽に蒸着した。さらに、マグネシウムリボン1gを入れたモリブデン製の抵抗加熱ポートと銀ワイヤー500mgを入れたタングステン製バスケットとを真空槽に装着した。その後、真空槽を $1 \times 10^{-4}\text{Pa}$ まで減圧した。減圧後、Alq₃を入れたポートを270℃まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3nm/秒で発光層上にAlq₃を蒸着して膜厚40nmのAlq₃層(電子注入層に相当)を設けた。続けて、銀ワイヤー入りのバスケットに通電して蒸着速度0.1nm/秒で銀を蒸着させると同時にマグネシウムリボン入りのポートに通電して蒸着速度1.4~2.0nm/秒でマグネシウムを蒸着した。この二元同時蒸着により、Alq₃層上に膜厚20nmのマグネシウム-銀層(陰極に相当)が形成された。この素子のITO電極を陽極とし、マグネシウム-銀層を陰極として、直流10Vを印加したところ、電流密度が5ミリアンペア/cm²の電流が流れ、ピーク波長460nmのPurple Blueの発光を得た。このときの輝度は 15cd/m^2 であり、発光効率は0.11ルーメン/Wであった。得られた発光は、(DPV)、Bの固体蛍光とほぼ一致することから(DPV)、Bからの発光と確認された。このように3官能スチリル化合物よりも4官能スチリル化合物を発光材料として用いた方が、輝度および発光効率が高いことが明らかになった。

【0071】

【発明の効果】以上の如く、本発明の4官能スチリル化合物を用いたEL素子は発光効率に優れ、かつ高輝度発光を可能とした。従って、本発明の有機EL素子は、高輝度および高効率の有機EL素子として、様々な工業分野において利用することができる。